

水平孔を用いた石炭地下ガス化（UCG）システムにおける生成ガス成分の制御および反応領域の推定

その他（別言語等）のタイトル	Control of Product Gas Compositions and Estimation of Gasification Area in Underground Coal Gasification (UCG) System with a Horizontal Well
著者	濱中 晃弘，板倉 賢一，蘇 発強，高橋 一弘，佐藤 孝紀，児玉 淳一，出口 剛太
雑誌名	資源・素材講演集
巻	5
号	2
ページ	3501-07-01
発行年	2018
URL	http://hdl.handle.net/10258/00010103

企画講演

最近の石炭等エネルギーの開発・利用の動向 (1)

2018年9月12日(水) 09:30 ~ 12:00 第5会場 (A棟 2階 A22講義室)

[3501-07-01] 水平孔を用いた石炭地下ガス化 (UCG) システムにおける生成ガス成分の制御および反応領域の推定 Control of Product Gas Compositions and Estimation of Gasification Area in Underground Coal Gasification (UCG) System with a Horizontal Well

○濱中 晃弘¹、板倉 賢一²、蘇 発強³、高橋 一弘²、佐藤 孝紀²、児玉 淳一⁴、出口 剛太⁵ (1. 九州大学、2. 室蘭工業大学、3. 河南理工大学、4. 北海道大学、5. 地下資源イノベーションネットワーク)

○Akihiro Hamanaka¹, Ken-ichi Itakura², Su Fa-qiang³, Kazuhiro Takahashi², Kohki Satoh², Jun-ichi Kodama⁴, Gota Deguchi⁵ (1. Kyushu University, 2. Muroran Institute of Technology, 3. Henan Polytechnic University, 4. Hokkaido University, 5. Underground Resources Innovation Network)

キーワード：石炭地下ガス化、水平孔、同軸方式、破壊音

Underground coal gasification, Horizontal well, Co-axial system, Acoustic emission

石炭地下ガス化 (Underground Coal Gasification: UCG) は、石炭層に注入孔および生産孔のボーリングを穿ち、地下の石炭層を原位置で燃焼・ガス化させることで、地表で一酸化炭素、水素、メタンを主成分とする可燃性ガスを回収する技術であり、これまで経済的・技術的な観点から回収のできなかった未利用石炭資源の有効利用技術である。これまで検討を行ってきた同軸方式UCGシステム (1本のボーリング孔のみによりガス化剤の注入および生成ガスの回収を実施) は、断層や褶曲等が存在する複雑な炭層条件下においても柔軟な適用が可能であるが、従来のUCGシステムと比較してガス化継続時間が短く、生成ガスの発生量が少ないことや、発熱量が小さいといった課題が指摘されてきた。また、地下で生じる燃焼・ガス化プロセスは直接観察できない事象であるため、周辺環境への影響の抑制およびガス化反応の効率の向上のためには、UCGの反応領域を推定することが必要であると考えられる。

本講演では、中規模の石炭ブロック (0.5 m × 0.5 m × 2.5 m) を用いたUCG模型実験の実施により、水平孔を用いた同軸方式UCGシステムによる生成ガス成分の制御および反応領域の推定を検討した結果について述べる。

1. はじめに

石炭地下ガス化(Underground Coal Gasification: UCG)とは、地表における石炭ガス化の概念を地下の石炭層に転用したものであり、石炭層に注入孔および生産孔のボーリングを穿ち、地表より空気や酸素といった酸化剤を注入しつつ地下の石炭層を原位置で燃焼させることで炭層内温度を高め、化学反応を促進させることにより、地表で生成ガスの熱エネルギーや一酸化炭素、水素、メタンを主成分とする可燃性ガスを回収する技術である。これまで検討を行ってきた同軸方式 UCG システム(1本のボーリング孔のみによりガス化剤の注入および生成ガスの回収を実施)は、断層や褶曲等が存在する複雑な炭層条件下においても柔軟な適用が可能であるが、従来の UCG システムと比較してガス化継続時間が短く、生成ガスの発生量が少ないことや、発熱量が小さいといった課題が指摘されてきた^{1,2)}。また、地下で生じる燃焼・ガス化プロセスは直接観察できない事象であるため、周辺環境への影響の抑制およびガス化反応の効率の向上のためには、UCG の反応領域を推定することが必要であると考えられる。上述の背景より、本報告では、水平孔を用いた同軸方式 UCG システムによる生成ガス成分の制御および反応領域の推定を目的とし、石炭ブロック(500 mm × 500 mm × 2,500 mm)を用いた UCG 模型実験の実施した結果について述べる。

2. UCG 模型実験

図1に石炭ブロックを用いた UCG 模型実験の概念図を示す。本実験では、鋼製容器の底面から 125 mm の位置に 2,600 mm の深さまで穿孔した直径 45 mm の水平孔を実験に供した。注入管には 1/2 インチ管を用い、注入管の内側から注入ガスを供給し、注入管の外側と孔壁の間から生成ガスを回収した。

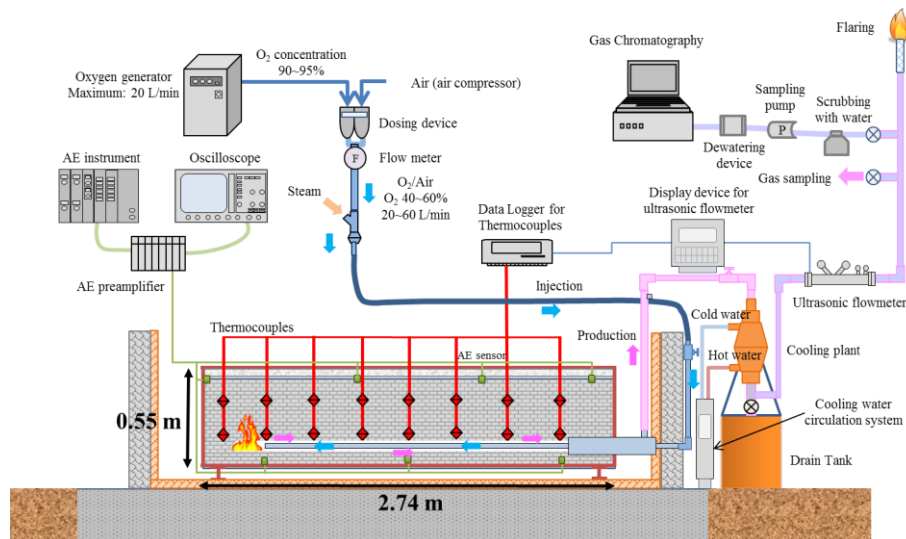


図1 UCG 模型実験概念図

表1 石炭試料の工業分析値および元素分析値

Calorific value (MJ/kg)	Proximate analysis (wt%)				Ultimate analysis (wt%)				
	Moisture	Ash	Volatiles	Fixed carbon	C	H	N	S	O
30.18	2.9	7.9	42.2	47.0	73.2	5.46	1.64	0.95	10.64

実験は、最初に水平孔の孔底に充填した破碎炭に市販のボンベタイプのガスバーナーを用いて着火し、着火確認後、酸素富化空気(酸素濃度は 50%で一定)を連続的に注入することで、炭層内部の燃焼とガス化を継続させた。実験が進むにつれ、石炭の燃焼・ガス化範囲が拡大することに伴い、石炭の反応比表面積も増大すると考えられるため、安定したガス化に必要な酸化剤を供給するために図2に示すように注入量を段階的に増大させた。実験中は K 型熱電対(SUS310S; Chino Corp.)およびデータロガー(GL220; GRAPHTEC Corp.)を用いて炭層内温度を計測し、圧電型加速度トランスデューサ(620HT; Teac Corp.)を用いて AE 波を検出し、アンプ(SA-611; Teac Corp.)によって増幅の後、オシロスコープ(GR-7000; Keyence Corp.)で継続的に AE 波形を計測した。図3(a), (b)に熱電対および圧電型加速度トランスデューサの配置を示す。UCG プロセス中の生成ガスは、超音波流量計(DigitalFlow™ GM868)で生成ガスの流量を計測し、ガスに含まれる水分やタ

ール分を除去した後、1 時間毎にマイクロガスクロ(INFLECTION Micro GC 3000A)により、酸素(O_2)、窒素(N_2)、二酸化炭素(CO_2)、水素(H_2)、一酸化炭素(CO)、メタン(CH_4)、エチレン(C_2H_4)、エタン(C_2H_6)、プロピレン(C_3H_6)、プロパン(C_3H_8)の濃度を計測した。また、注入管の先端は孔底から 200 mm の位置で実験を開始したが、炭層温度、生成ガス量、各種ガス濃度を基にガス化反応に進展がないと判断された場合、ガス化領域を未反応の石炭部分に移動させるため、注入管の先端をおよそ 5 時間ごとに 100 mm ずつ同軸管側に順次移動させた。本実験でのガス化実験継続時間は 95 時間であった。実験終了時には、消火のため二酸化炭素をガス化領域に注入し、実験終了後、石炭ブロック内部に白セメントおよび石膏の混合溶液を流し込み、固化後に試料を切削して垂直断面の状況を観察した。

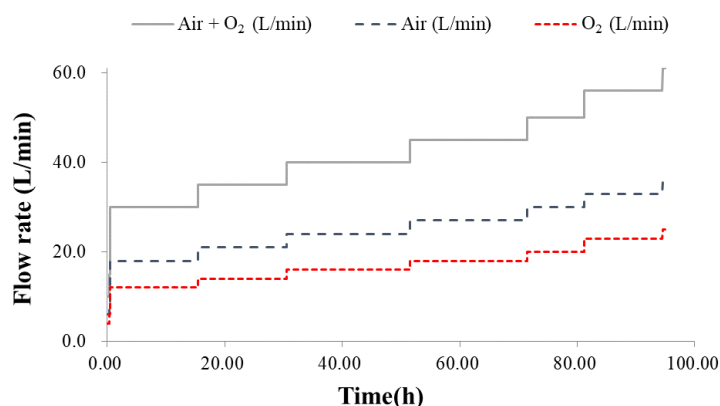


図 2 UCG 模型実験中の注入条件

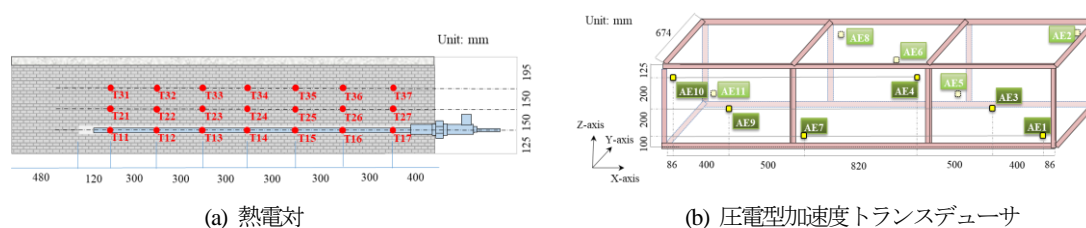


図 3 計測センサーの配置

3. 結果および考察

3・1 温度分布およびガス化領域

熱電対より得られた温度結果を基に作成した温度分布の結果を図 4 に示す。同図より、注入管の位置の移動に伴い、高温領域も移動していることが分かる。これは、ガス化領域が酸化剤の注入位置周辺で活発になることを示しており、注入管の位置を移動させることでガス化領域も移動させることが可能であると考えられる。すなわち、注入管の位置を移動させることで、ガス化領域の制御が可能であると考えられる。

図 5 は実験終了後の断面観察から、ガス化後空洞、チャー(Char)、未反応石炭を推定した図である。断面観察より、今回の実験において温度計測結果で示された高温領域の形状およびチャー(Char)の形状を比較すると、両者の結果は同様の形状を示していることから、高温領域においてガス化反応が進展し、空洞またはチャー(Char)が形成されたと考えられる。また、水平孔付近の石炭下部において広範囲でガス化されていることから、注入管を移動させることで水平方向にガス化領域を拡大させることが可能であることが明らかとなった。以上まとめると、石炭の温度状況をモニタリングすることで燃焼・ガス化領域の予測は可能であると推察されるが、UCG サイトにおいて地下の炭層の温度を多数測定することは現実的に困難である。そこで、次節では、燃焼・ガス化領域を推定するための手法として、AE 計測を用いた炭層内部のモニタリングに関して検討を行う。

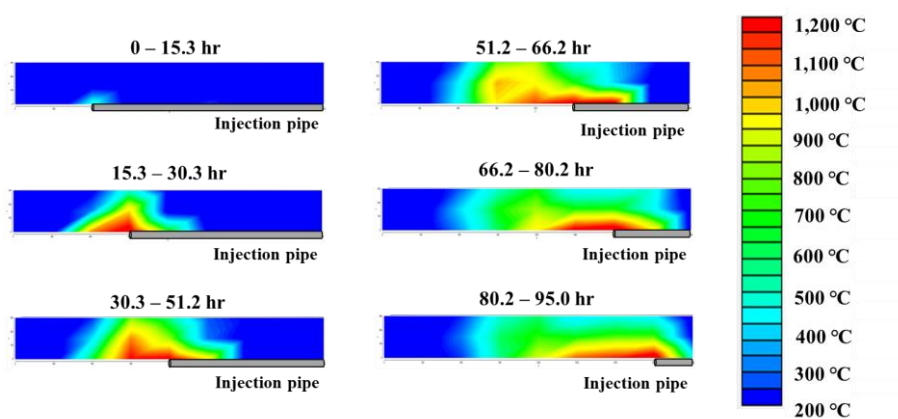


図 4 炭層内最高温度分布結果

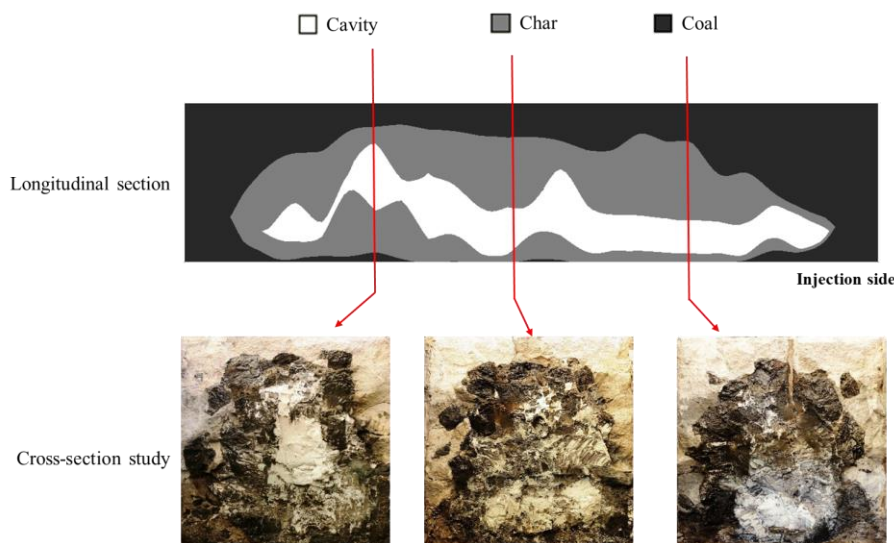


図 5 実験後断面調査結果によるガス化後空洞・ガス化領域モデル

3・2 AE 計測による震源標定

本研究では、反復最小二乗法により、(3)式より震源座標の最確値を算出した^{3,4)}。震源標定解析に用いる石炭の弾性波速度は UCG 実験を行う前にハンマーで打撃することにより強制的に既知の位置で震源を発生させ、AE 波の到達時間差より弾性波速度の推定を行い、0 – 51.2 hr までは $V_x = 640 \text{ m/s}$, $V_y = 390 \text{ m/s}$, $V_z = 395 \text{ m/s}$ とし、51.2 – 95.0 hr までは $V_x = 690 \text{ m/s}$, $V_y = 540 \text{ m/s}$, $V_z = 600 \text{ m/s}$ とした。なお、それぞれの軸方向は図3 (b)に示している。それぞれの軸方向で弾性波速度が異なる原因としては、石炭内部の不均質な性質によるものと考えられる。

図6 (a)～(f)に AE 震源標定結果と炭層内最高温度分布を示す。同図より、注入管の位置を移動させることで高温領域の移動に伴い AE 震源の位置も移動していることがわかる。これは、注入管の移動により酸素の供給される領域も移動するため、その結果、燃焼・ガス化領域も移動するためと考えられるが、本結果は、燃焼・ガス化領域の移動に関しても AE 計測による推定が可能であることを示唆している。これらの AE は燃焼・ガス化領域周辺の熱応力や石炭の軟化熔融後の硬化過程によって発生するき裂に起因すると考えられるが^{5,6)}、これらの情報を活用することでリアルタイムに地下の状況を監視することが可能であるため、UCG 中の AE 計測により過度な損傷や燃焼・ガス化領域の広がり特定することで、地下水汚染、ガス漏れ、地盤沈下等の周辺環境に与える環境リスクを低減させることにも寄与すると考えられる。以上要するに、AE 計測は UCG 中の地下のモニタリング技術として有用であると考えられる。しかしながら、AE 計測では、き裂の発生した位置は推定できるものの、地下の反応石炭量を推定することは困難であるため、正確に燃焼・ガス化領域を推定するためには別の手法による UCG 中の反応石炭量の予測が必要であると考えられる。そこで、次節では、生成ガスの成分および流量を用いた UCG プロセス中の反応石炭量の予測に関して検討を行う。

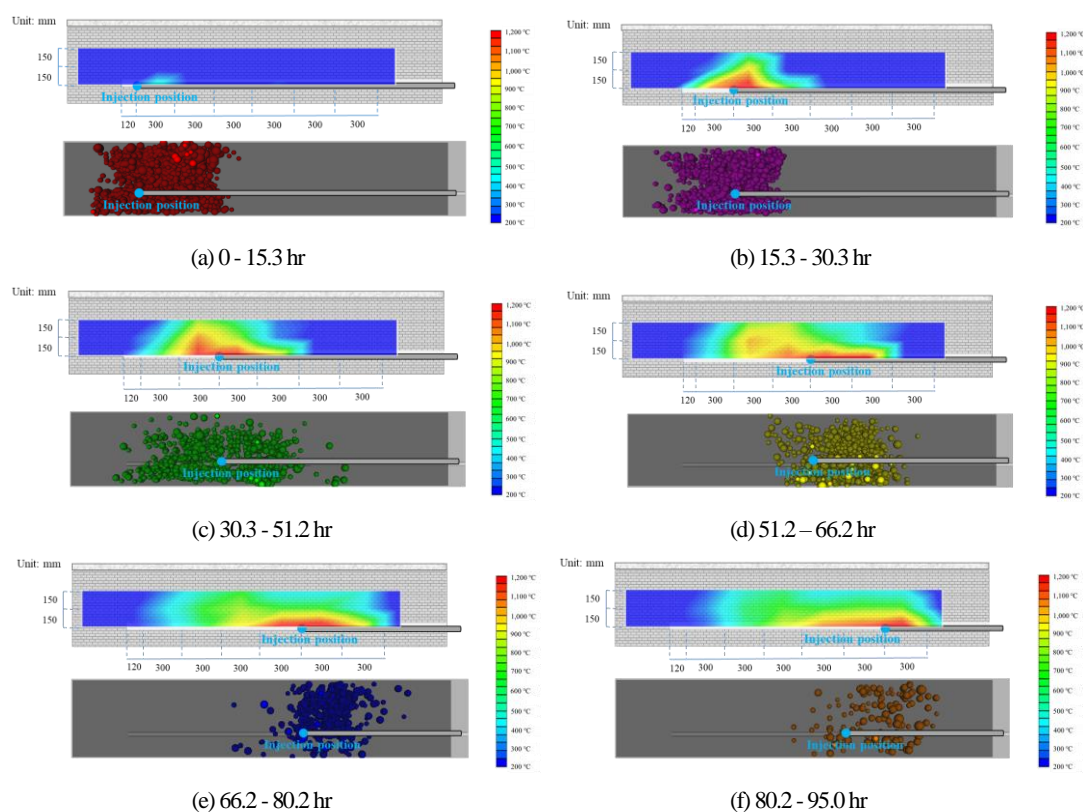


図 6 AE 震源標定結果と炭層内最高温度分布

3・3 反応ガス化石炭量の推定

図7に実験開始から終了までの生成ガスの主要成分および発熱量の変化を示す。生成ガスの発熱量は、各実験での生成ガスの H_2 、 CO 、 CH_4 などの可燃性ガス成分の濃度から計算で求めることができる⁷⁾。同図より、生成ガスの発熱量が徐々に増大していることがわかる。これは、既往の報告⁸⁾より、酸化剤の注入流量が増大したことに起因すると考えられる。さらに、注入管の位置を移動した直後に H_2 、 CO 、 CH_4 などの可燃性ガスが急激に増大している傾向にある。表2に本実験で得られた生成ガス成分および発熱量の平均値を示す。同表より、UCGで回収される主要な可燃性ガス成分の平均値は H_2 が17.06%、 CO が17.24%、 CH_4 が6.59%であり、生成ガスの平均発熱量は8.05 MJ/Nm³であった。これらの結果は、海外諸国における研究成果と比較しても同等のものであり⁹⁻¹¹⁾、本実験における結果の妥当性が伺える。

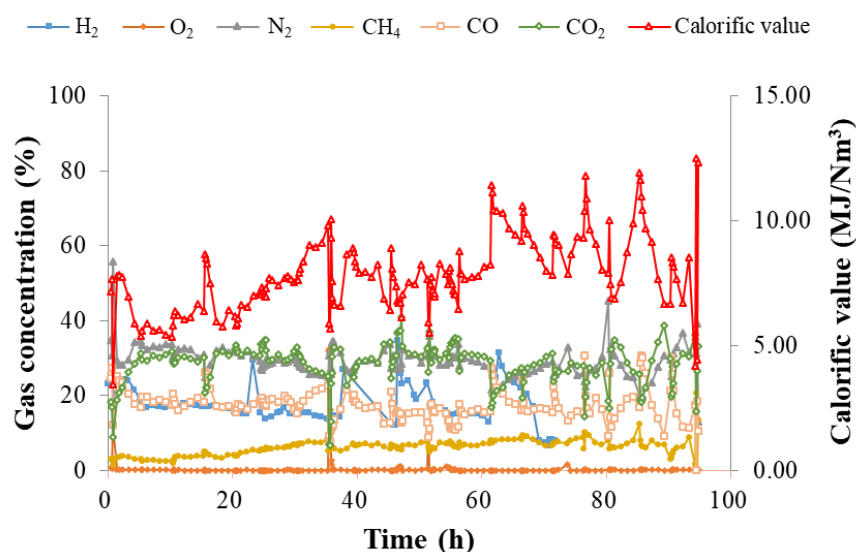


図 7 生成ガスの主要成分および発熱量の変化

表2 生成ガス成分および発熱量の平均値

Calorific value (MJ/Nm ³)	H ₂ (%)	CO (%)	CH ₄ (%)	CO ₂ (%)	C ₂ H ₄ (%)	C ₂ H ₆ (%)	C ₃ H ₆ (%)	C ₃ H ₈ (%)
8.05	17.06	17.24	6.59	28.88	0.47	0.61	0.20	0.17

上述のガス分析結果および生成ガス流量の結果より、生成ガス中の炭素分を含有するガス(CO, CO₂, 他の炭化水素系ガス)の総量を算出し、炭素分の元素収支を計算することで反応石炭素量を求めた¹²⁾。表4に炭素収支表を示す。なお、実験中に生じたチャーやタールの炭素量は生成ガス中に含有される炭素量と比較して微量であると考えられたため考慮していない。炭素収支の計算の結果、炭素分の反応量は130.9 kgと推定され、表1より石炭中の炭素含有量が73.2%であることを考慮すれば、反応石炭量は178.8 kgであったと推定される。また、図8は炭素収支により算出した UCG 中の反応石炭量の推移を示しているが、反応石炭量が徐々に増大していることがわかる。これは、燃焼・ガス化領域の拡大に伴い注入する酸化剤の流量を増大させたことによって、石炭のガス化反応が促進されたためであると考えられる。AE 計測に加えて、このような反応石炭量の推定結果を組み合わせることで、UCG 中における地下のモニタリング精度を向上させることが可能になると考えられる。

表3 炭素収支の算出

Gas component	Total amount of product gas	Balance of C element	
	mol	mol	kg
CO	3359.8	3359.8	40.3
CO ₂	5627.5	5627.5	67.5
CH ₄	1284.0	1284.0	15.4
C ₂ H ₄	91.1	182.2	2.2
C ₂ H ₆	118.2	236.3	2.8
C ₃ H ₆	38.1	114.4	1.4
C ₃ H ₈	33.6	100.7	1.2
Total	19483.2	10904.8	130.9

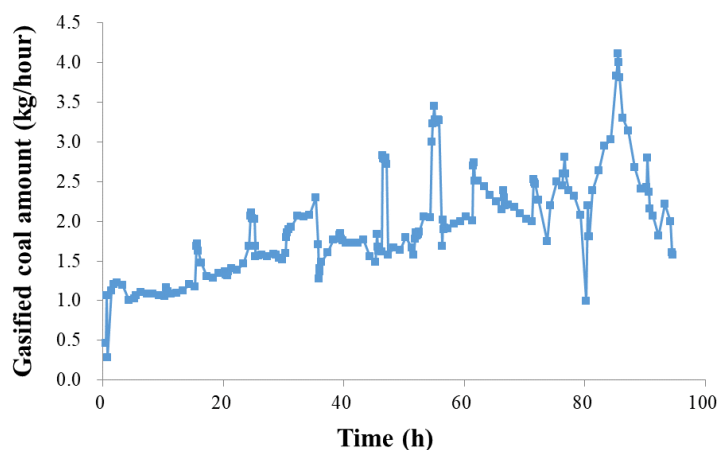


図8 生成ガスによる反応石炭量の予測

4. おわりに

本研究では、UCG における燃焼・ガス化領域を可視化する手段として、AE 計測による内部モニタリングおよび生成ガス成分による反応石炭量野推定に関して検討するために水平孔を用いた UCG 模型実験を行った。その結果、注入菅の位置の移動に伴い高温領域も移動し、AE 震源標定結果も炭層内の温度分布と結果が調和的であった。AE はき裂の発生と同時に放出されるため、リアルタイムに地下の状況を監視することが可能であるが、反応石炭量を推定することは困難であるため、AE 計測により燃焼・ガス化領域の範囲を推定するには十分な検討を要する。そこで、生成ガスの成分および流量の結果より、UCG 中の反応石炭量を推定した。以上要するに、AE 計測により UCG の反応が生じている場所を特定し、生成ガスより算出される反応石炭量により反応領域の範囲を推定することができれば、UCG 中の AE 計測を用いた地下のモニタリング技術を確立することが可能であると考えられる。

謝 辞

本研究は、JSPS 科研費 JP15H02332 の助成を受けたものであり、北海道三笠市、文部科学省の特別経費「大学の特性を生かした多様な学術研究機能の充実」、室蘭工業大学環境科学・防災研究センター、三美鉱業株式会社および石炭地下ガス化研究会(JUCG)の支援、協力を受けております。関係各位に、お礼申し上げます。

参考文献

- 1) F. Q. Su, A. Hamanaka, K. Itakura, G. Deguchi, K. Satoh, J. Kodama: Evaluation of Coal Combustion Zone and Gas Energy Recovery for Underground Coal Gasification (UCG) Process, *Energy & Fuel*. **31**(2017), pp. 154–169.
- 2) A. Hamanaka, F. Q. Su, Itakura, K. K. Takahashi, J. Kodama, G. Deguchi: Effect of Injection Flow Rate on Product Gas Quality in Underground Coal Gasification (UCG) Based on Laboratory Scale Experiment: Development of Co-Axial UCG System, *Modern Environmental Science and Engineering* **2**(2016), pp. 599-605.
- 3) M. Honma, N. Kasugaya: Jigen Kaiseki Saisyō Jijōho to Jikken shiki, (Korona sya, Tokyo, 1986).
- 4) H. R. Hardy: Acoustic Emission/Microseismic Activity Volume 1, (Principles, Techniques and Geotechnical Applications. USA: CRC Press / The Pennsylvania State University, University Park, Pennsylvania, USA, 2003).
- 5) F. Q. Su, T. Nakanowatari, K. Itakura, K. Ohga, and G. Deguchi: Evaluation of Structural Changes in the Coal Specimen Heating Process and UCG Model Experiments for Developing Efficient UCG Systems, *Energies*. **6**(2013), pp. 2386-2406.
- 6) J. Kodama, T. Tatekawa, R. Naka, A. Hamanaka, K. Itakura, G. Deguchi, D. Fukuda, Y. Fujii: Comparison of Combustion and Gasification between Crushed and Block Coals in UCG Model Tests, *Journal of MMIJ*, **134**(2018), pp. 91-98.
- 7) F. Q. Su, K. Itakura, G. Deguchi, K. Ohga, and M. Kaiho: Evaluation of Structural Changes in the Coal Specimen Heating Process and UCG Model Experiments for Developing Efficient UCG Systems, *Journal of MMIJ*. **131**(2015), pp. 203–218.
- 8) A. Hamanaka, F. Q. Su, Itakura, K. K. Takahashi, J. Kodama, G. Deguchi: Effect of Injection Flow Rate on Product Gas Quality in Underground Coal Gasification (UCG) Based on Laboratory Scale Experiment: Development of Co-Axial UCG System, *Energies* **10**(2017), 238; doi:10.3390/en10020238.
- 9) K. Kapusta, M. Wiatowski, K. Stanczyk: An experimental ex-situ study of the suitability of a high moisture ortho-lignite for underground coal gasification (UCG) process, *Fuel*, **179**(2016), pp. 150-155.
- 10) Z. Q. Wang, J. Liang, L. X. Shi, J. F. Xi, S. Li, Y. Cui: Expansion of three reaction zones during underground coal gasification with free and percolation channels, *Fuel*, **190**(2017), pp. 435-443.
- 11) M. Wiatowski, K. Kapusta, M. Ludwik-Pardala, K. Stanczyk: Ex-situ experimental simulation of hard coal underground gasification at elevated pressure, *Fuel*, **184**(2016), pp. 401-408.
- 12) M. Wiatowski, K. Kapusta, J. Swiadrowski, K. Cybulski, M. Ludwik-Pardala, J. Grabowski, K. Stanczyk, K. Technological aspects of underground coal gasification in the Experimental "Barbara" Mine, *Fuel*, **159**(2015), pp. 454-462.